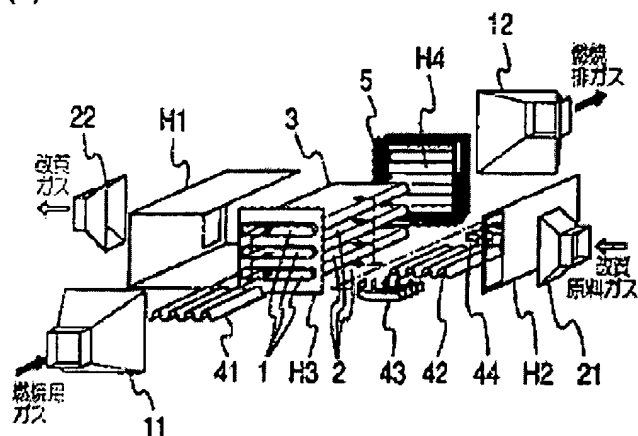


REFORMER

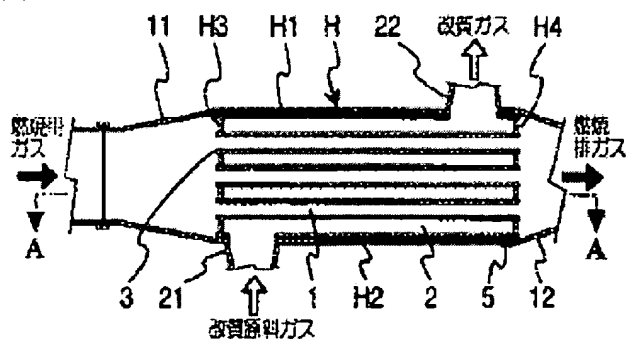
Patent number: JP2002080203
Publication date: 2002-03-19
Inventor: KATOU IKUYASU; NAGAMI TETSUO; YOSHIDA KAZUHIKO
Applicant: TOYOTA MOTOR CORP;; NIPPON SOKEN
Classification:
 - international: C01B3/32; F28F9/00; H01M8/06
 - european:
Application number: JP20000290568 20000925
Priority number(s): JP20000290568 20000925; JP20000206013 20000707

Abstract not available for JP2002080203

(a)



(b)



(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号
特開2002-80203
(P2002-80203A)

(43) 公開日 平成14年3月19日 (2002.3.19)

(51) Int.Cl. ⁷	識別記号	F I	テ-マ-ト* (参考)
C 0 1 B 3/32		C 0 1 B 3/32	A 3 L 0 6 5
F 2 8 F 9/00	3 3 1	F 2 8 F 9/00	3 3 1 4 G 0 4 0
H 0 1 M 8/06		H 0 1 M 8/06	G 4 G 1 4 0 5 H 0 2 7

審査請求 未請求 請求項の数13 O L (全 9 頁)

(21) 出願番号 特願2000-290568 (P2000-290568)
(22) 出願日 平成12年9月25日 (2000.9.25)
(31) 優先権主張番号 特願2000-206013 (P2000-206013)
(32) 優先日 平成12年7月7日 (2000.7.7)
(33) 優先権主張国 日本 (J P)

(71) 出願人 000004695
株式会社日本自動車部品総合研究所
愛知県西尾市下羽角町岩谷14番地
(71) 出願人 000003207
トヨタ自動車株式会社
愛知県豊田市トヨタ町1番地
(72) 発明者 吉田 一彦
愛知県西尾市下羽角町岩谷14番地 株式会
社日本自動車部品総合研究所内
(74) 代理人 100067596
弁理士 伊藤 求馬

最終頁に続く

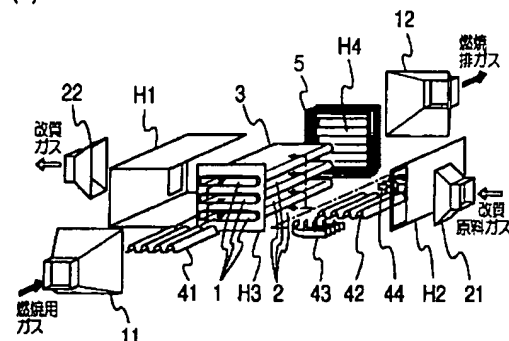
(54) 【発明の名称】 改質器

(57) 【要約】

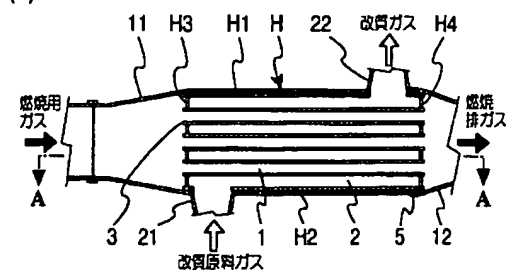
【課題】 燃焼層と改質層を分離した構造の改質器において、燃焼熱で構成部材が熱膨張することによる不具合をなくし、改質効率が高く、耐久性に優れた改質器を得る。

【解決手段】 容器体H内に、複数の偏平チューブ3を所定間隔で平行配設して、偏平チューブ3内部空間を燃焼層1、偏平チューブ3間に形成される空間を改質層2とする。ガス流れの出口側の容器体Hの端部に伸縮可能なベローズ5を設けて、偏平チューブ3の熱膨張による伸びを吸収させ、応力を緩和して、改質器の耐久性を向上させる。

(a)



(b)



【特許請求の範囲】

【請求項1】 容器体内に、改質原料ガスを導入して改質反応を生起することにより水素を生成する改質層と、燃焼用ガスを導入して燃焼反応を生起することにより上記改質層に供給する熱を発生する燃焼層とを設け、これら改質層と燃焼層を区画する分離壁を介して熱交換させる改質器において、上記分離壁の熱膨張による伸びを吸収して熱応力を緩和する応力緩和手段を設けたことを特徴とする改質器。

【請求項2】 上記改質層と上記燃焼層内のガス流れの方向を同一方向とした請求項1記載の改質器。

【請求項3】 上記容器体内に、複数の筒状部材を平行配設して、各筒状部材の両端を上記容器体端面に固定し、上記筒状部材の内部空間を上記改質層および上記燃焼層の一方、上記筒状部材の外部空間を上記改質層および上記燃焼層のもう一方となし、かつ上記筒状部材の筒壁を上記分離壁とした請求項1または2記載の改質器。

【請求項4】 上記容器体と一体に上記筒状部材の長手方向に伸縮するベローズを設けて上記応力緩和手段とした請求項3記載の改質器。

【請求項5】 上記ベローズを上記燃焼層の出口側に近い上記容器体端面に形成した請求項4記載の改質器。

【請求項6】 偏平な断面形状を有する複数の上記筒状部材を、ガス流れと直交する方向に所定間隔を置いて、かつその短辺を上記容器体の両側面に当接させて平行に配置することにより、上記容器体内に上記改質層と上記燃焼層を交互に積層した請求項3ないし5記載の改質器。

【請求項7】 上記改質層および上記燃焼層内に伝熱用フィンを配設して触媒を担持した請求項1ないし6のいずれか記載の改質器。

【請求項8】 上記燃焼用ガスが燃料ガスと酸素含有ガスを含み、これら燃料ガスと酸素含有ガスを上記燃焼層に分離導入する導入口を設けた請求項1ないし7のいずれか記載の改質器。

【請求項9】 分離導入された上記燃料ガスを上記燃焼層内に吐出する吐出口を、上記燃焼層内のガス流れ方向の複数箇所に設けた請求項8記載の改質器。

【請求項10】 上記容器体内に上記改質層と上記燃焼層を交互に積層し、上記改質層を挟んで隣り合う複数の上記燃焼層に分離導入された上記燃料ガスを吐出する吐出口を、ガス流れ方向の異なる部位で開口させた請求項8記載の改質器。

【請求項11】 上記吐出口から吐出される上記燃料ガスの吐出量をデューティ制御する制御手段を設けた請求項9または10記載の改質器。

【請求項12】 上記燃焼層の上流に上記容器体外部への火炎伝播を防止する火炎伝播防止手段を設けた請求項1ないし11のいずれか記載の改質器。

【請求項13】 上記火炎伝播防止手段が、二重金属メ

ッシュ、発泡金属、または焼結金属よりなり、上記燃焼層の上流に設けた燃焼用ガス導入口を横切って配設される請求項12記載の改質器。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】 本発明は、燃料電池に用いられる積層型改質器に関する。

【0002】

【従来の技術】 水素と酸素を燃料として発電を行う燃料電池では、燃料となる水素を改質器を用いて生成している。改質器は、メタノール、メタン、ガソリン等の炭化水素系の燃料を改質原料とし、水蒸気と触媒反応させることで水素を取り出している。この改質反応は吸熱反応であるため、外部から熱を供給する必要がある、反応を効率よく進めるための触媒や、改質器構造が種々検討されている。一例として、従来より、部分酸化併用型の改質器が知られており、その原理を図4(b)に示す。図のように、部分酸化併用型の改質器は、複数の仕切られた改質層の各層に、改質原料であるメタノールと水蒸気、および少量の酸素(空気)を含むガスを導入するように構成されている。そして、メタノールの一部を触媒燃焼させることにより熱を発生させ(発熱反応-反応式③)、この反応熱を利用して、メタノールと水蒸気に改質反応を生起し、水素を生成している(吸熱反応-反応式②)。

【0003】ところが、この方式では、各改質層で、発熱反応と吸熱反応を同時に行っているために、改質層の導入側端部で燃焼反応が終了し、導入した酸素が消費されるため、導出側端部では燃焼反応がほとんど生じず、熱が供給されないという問題がある。また、導出側端部まで熱が供給される条件とした場合には、導入側端部の温度が触媒劣化温度以上に上昇してしまう問題が生じる。

【0004】このため、図4(a)に示すように、燃焼層と改質層とを分離壁で区画し、交互に積層して熱交換させる積層型の改質器が提案されている(例えば、実開平5-85828号公報、実開平7-40746号公報等)。積層型の改質器では、燃焼層に、生成する水素の一部と酸素(空気)を燃焼用ガスとして導入し、一方、改質層には、メタノールと水蒸気のみを改質原料ガスとして導入して、燃焼層で水素が触媒燃焼することにより発生する熱を(反応式①)、分離壁を介して改質層に伝熱して改質反応を生起する(反応式②)。従って、両層へのガス導入量を調整することで発熱量の調整を行い、改質層への伝熱熱を効率良く行うことができる。

【0005】

【発明が解決しようとする課題】 積層型の改質器は、燃焼層と改質層にそれぞれ異なるガスを導入しているため、燃焼層と改質層の間を確実に分離し、シール性を高めることが望ましい。しかしながら、燃焼層が水素の発

熱反応により高温になること、改質層も改質反応温度以上に維持されるために、両者を区画する分離壁はかなりの高温となる。従って、分離壁が固定されていると、その熱膨張により接合部等に熱応力が発生し、熱疲労によって耐久性が低下するおそれがある。

【0006】本発明は上記実情に鑑みなされたもので、その目的は、燃焼層と改質層を分離した構造の改質器において、燃焼層で発生する熱で構成部材が熱膨張することによる不具合をなくすことにより、改質反応を効率良く行うことができ、しかも耐久性に優れた改質器を提供することにある。

【0007】

【課題を解決するための手段】上記課題を解決するために、本発明請求項1の改質器は、容器体内に、改質原料ガスを導入して改質反応を生起することにより水素を生成する改質層と、燃焼用ガスを導入して燃焼反応を生起することにより上記改質層に供給する熱を発生する燃焼層とを設けてなる。これら改質層と燃焼層は、両層を区画する分離壁を介して熱交換させるようになしてあり、その際に、上記分離壁の熱膨張による伸びを吸収して熱応力を緩和する応力緩和手段を有している。

【0008】上記構成によれば、上記分離壁を上記容器体に固定しても、上記応力緩和手段によって上記分離壁の熱膨張による伸びが吸収されるので、熱応力により上記分離壁や上記容器体の構成材が疲労する等の不具合を生じることがない。よって、上記改質層と燃焼層の間のシール性を高めて、各層内の反応を効率良く進め、しかも、耐久性の高い改質器が実現できる。

【0009】請求項2の構成では、上記改質層と上記燃焼層内のガス流れの方向を同一方向とする。改質原料ガスは、通常、改質反応温度以上に加熱されるため、上記改質層の入口側では反応が進むが、温度が低くなる出口側では反応が進行しなくなる。この際、改質層と燃焼層のガス流れが平行流であると、両層に導入されるガス流量を調整する等により、上記燃焼層から上記改質層への熱の供給を容易に制御でき、効率良い熱交換が可能になる。

【0010】請求項3の構成では、上記容器体内に、複数の筒状部材を平行配設して、各筒状部材の両端を上記容器体端面に固定し、上記筒状部材の内部空間を上記改質層および上記燃焼層の一方、上記筒状部材の外部空間を上記改質層および上記燃焼層のもう一方となし、かつ上記筒状部材の筒壁を上記分離壁とする。

【0011】具体的には、上記容器体内を複数の筒状部材を用いて区画すれば、上記改質層と上記燃焼層とを容易に分離することができる。この時、上記筒状部材の筒壁が上記分離壁となり、その両端を固定することで上記容器体との熱伸縮の差による応力の発生が懸念されるが、本発明では、上記応力緩和手段の作用で応力を緩和することができる。

【0012】請求項4の構成では、上記容器体と一体に上記筒状部材の長手方向に伸縮するベローズを設けて上記応力緩和手段とする。このように、上記容器体の一部をベローズ状に形成すれば、上記筒状部材の熱伸縮に追従して上記ベローズが伸縮するので、応力の発生を抑制することができる。

【0013】請求項5の構成では、上記ベローズを、上記燃焼層の出口側に近い上記容器体端部に形成する。上記燃焼層の入口側では燃焼反応による発熱量が大きいため、表面積の大きい上記ベローズを入口側に設けると、熱の損失が大きくなる。そこで、上記ベローズを設ける場合には、より温度の低い上記燃焼層の出口側に設けるのがよく、発生する熱を効率良く利用することができる。

【0014】請求項6の構成では、偏平な断面形状とした複数の上記筒状部材を用い、ガス流れと直交する方向に所定間隔をおいて平行に配置する。また、上記筒状部材は、その短辺を上記容器体の両側面に当接させて配置する。これにより、上記容器体内に、上記改質層と上記燃焼層を交互に積層した積層構造の改質器が得られる。

【0015】請求項7の構成では、上記改質層および上記燃焼層内に伝熱用フィンを配設して触媒を担持する。触媒を担持したフィン設けることで、伝熱効率が向上するとともに、反応面積が増大し、改質反応および燃焼反応を促進することができる。

【0016】請求項8の構成では、上記燃焼用ガスが燃料ガスと酸素含有ガスを含み、これら燃料ガスと酸素含有ガスを上記燃焼層に分離導入する導入口を設ける。燃料ガスを酸素含有ガスと分離導入することで、各ガスの導入量の制御が容易になり、発熱量を多くしたい部位に燃料ガスを吐出して、効果的に触媒燃焼させ、必要な熱量を得ることができる。

【0017】請求項9の構成では、分離導入された上記燃料ガスを上記燃焼層内に吐出する吐出口を、上記燃焼層内のガス流れ方向の複数箇所に設ける。上記吐出口の近傍では発熱量が多く、隣接する改質層の温度が上がるが、下流に行くほど温度が下がるため、ガス流れ方向の複数箇所に上記吐出口を設けて、温度が低下する部位に上記燃料ガスを供給することにより、改質層の温度が常に改質反応開始温度以上となるようにすることができる。

【0018】請求項10では、上記容器体内に上記改質層と上記燃焼層を交互に積層した構造において、上記改質層を挟んで隣り合う複数の上記燃焼層に上記燃料ガスを吐出する吐出口を、ガス流れ方向の異なる部位で開口させる。1つの燃料層で発生する熱量は上段、下段の2つの改質層に供給される。従って、多段化された燃焼層の全てに同位置で上記吐出口を設けず、一段おきに異なる部位、例えば、上流部と中間部に開口させることで、燃料ガス導入配管の数を減らして、上記請求項9と同等

の効果を得ることができる。

【0019】請求項11では、請求項9または10記載の構成において、上記吐出口から吐出される上記燃料ガスの吐出量をデューティ制御する制御手段を設ける。上記制御手段は、個々の上記吐出口からの上記燃料ガス導入を間欠的に行い、その導入量をデューティ比の調整によって行う。間欠的な導入により、燃焼層（改質層）における急激な温度上昇が防止され、かつ改質層の温度が常に改質反応開始温度以上となるようにデューティ比を調整することによって、過渡期等、非定常時においても安定した燃焼が可能である。

【0020】請求項12の構成では、上記燃焼層の上流に上記容器体外部への火炎伝播を防止する火炎伝播防止手段を設ける。これにより、仮に燃焼層内で火炎が発生しても、その上流側への伝播を防止することができる。

【0021】具体的には、請求項13のように、上記火炎伝播防止手段は、二重金属メッシュ、発泡金属、または焼結金属よりなり、上記燃焼層の上流に設けた燃焼用ガス導入口を横切って配設される。これら材料を層状に配設することで、火炎の熱を奪って、上流の配管内への逆火を防止し、安全性を高めることができる。また、これら材料は、圧損が低く、整流性を有するので、多段化された各燃焼層内へ均一に燃焼用ガスを導入する効果も得られる。

【0022】

【発明の実施の形態】以下、図面により本発明の改質器の第1の実施の形態を説明する。改質器は、燃料電池システムにおいて燃料電池の燃料ガスとなる水素を生成するために用いられる。図1（b）は本発明の改質器の概略構造を示す図で、容器体H内に燃焼層1と改質層2を図の上下方向に交互に積層した積層型構造を有している。燃焼層1には燃焼用ガス導入口11から燃焼用ガスが、改質層2には改質原料ガス導入口21から改質原料ガスが、それぞれ導入され、各層を通過した後、燃焼排ガス導出口12、改質ガス導出口22から導出されるようになっている。

【0023】図1（a）は改質器の詳細構造を示す分解斜視図で、容器体Hは両端閉鎖の角筒形状であり、筒壁を構成するプレートH1、H2と端面となる隔板H3、H4とから構成される。容器体H内には、上下方向に所定の間隔をおいて、複数の筒状部材としての偏平チューブ3が平行配設されている。偏平チューブ3は短辺となる両側部が容器体の側壁内表面に当接するように配置されて、その上下の空間を区画している。燃焼層1は、これら複数の偏平チューブ3の内部に形成され、複数の偏平チューブ3の間に形成される空間が改質層2となる。そして、偏平チューブ3の上面または下面を分離壁として、隣り合う燃焼層1と改質層2とを分離している。

【0024】偏平チューブ3の左端は、隔板H3に設けた偏平穴に挿通固定される。隔板H3は、容器体Hの左

端開口に固定されてこれを閉鎖し、その外周縁には、燃焼用ガス導入口11を構成する筒状部材が接合される。これにより、燃焼用ガス導入口11と改質層2との間が遮断され、燃焼用ガスは燃焼層1にのみ流入する。各偏平チューブ3内には、伝熱用フィンとして波板状のプレートフィン41が配設されて、燃焼層1内をさらに複数の流路に区画している。プレートフィン41表面には、燃焼触媒（酸化触媒）が担持されて、導入される燃焼用ガスを触媒燃焼させるようになされており、その燃焼熱はプレートフィン41および偏平チューブ3壁を介して改質層2に伝達される。燃焼用ガスとしては、水素等の燃料ガスと酸素含有ガス（通常、空気）の混合ガスが好適に用いられる。

【0025】偏平チューブ3間に形成される改質層2内にも、それぞれ、伝熱用フィンとして同様の波板状のプレートフィン42が配設されて、複数の流路を形成している。この時、プレートフィン41、42の向きを一致させて、図2に示すように、燃焼層1内の燃焼用ガスの流れ方向と改質層2内の改質原料用ガスの流れ方向とが、平行流となるようにする。改質原料ガス導入口21を構成する筒状部材は、燃焼用ガス導入口11に近い容器体Hの側壁（図1（a）のプレートH2）に設けた開口に接続される。従って、改質原料ガスは流れの向きを変えてから、プレートフィン42にて形成される複数の流路に流入する必要があるため、これをスムーズに行うために、改質層2端部には改質原料ガスを案内する整流板43が配設される。

【0026】反応部となるプレートフィン42表面には、改質触媒が担持されており、導入される改質原料ガスに改質反応を生起して水素に改質する。改質原料ガスは、メタノール、メタン、ガソリン等の炭化水素系の燃料と、水蒸気を含むガスが好適に用いられる。吸熱反応である改質反応に必要な熱は、燃焼層1から、偏平チューブ3壁およびプレートフィン42を介して改質層2に供給される。改質反応により生成した水素を含む改質ガスは、整流板44によって再度向きを変え、改質ガス導出口22から、燃料電池へ送出される。改質ガス導出口22を構成する筒状部材は、燃焼排ガス導入口12に近い容器体Hの側壁（図1（a）のプレートH1）に設けた開口に接続される。

【0027】なお、改質層2の反応部は、プレートフィン42があるために圧力損失が大きくなり、整流板43、44での改質原料ガスの流速分布は小さくなる。

【0028】ところで、燃焼層1内は、触媒燃焼の反応熱により温度が上昇し、改質層2に導入される改質原料ガスも、通常、改質反応温度以上に加熱されているため、両層を分離する偏平チューブ3の温度が上昇して熱膨張する。このため、偏平チューブ3の両端を容器体Hに接合等に固定すると、接合部に熱応力が繰り返し加わって耐久性を低下させる懸念がある。

【0029】そこで、本実施の形態では、偏平チューブ3が固定される容器体Hと一体に、偏平チューブ3の熱膨張による伸びを吸収する応力緩和手段を設ける。具体的には、図3(a)に示すように、偏平チューブ3の右端が固定される隔板H4の外周縁より筒状に延びる蛇腹形状のベローズ5を応力緩和手段として設け、該ベローズ5をプレートH1、H2に接合することにより容器体Hを構成する。図3(b)のように、偏平チューブ3は長手方向に伸びるため、同方向に伸縮可能なベローズ5を設けることにより、この伸びを吸収し、応力を緩和することができる。ベローズ5材としては、例えばステンレスが好適に用いられる。隔板H4の外周縁には、図1のように、燃焼排ガス導出口12を構成する筒状部材が固定され、燃焼層1を通過しながら改質層と熱交換を行った燃焼排ガスを、外部の排気通路に導く。

【0030】上記構成の改質器の作動を説明する。改質原料ガスとして、例えば、メタノールと水蒸気の混合ガスを用い、約250～400℃(メタノールの場合)に加熱して改質原料ガス導入口21から改質層2に導入する。この温度は、改質反応が可能な温度以上で、導入される燃料によって異なる。改質原料ガスは、整流板43に案内されて反応部へ流入し、改質触媒によって改質反応を起こす。この改質反応は吸熱反応であるため、改質原料ガス温度が高い入口付近では、反応が進むが、出口側へ向かうほど、改質原料ガス温度が低下して改質反応が進行しなくなる。そこで、隣接する燃焼層1に燃焼用ガスを導入して触媒燃焼させ、その反応熱を偏平チューブ3壁、プレートフィン42を介して、改質層2に供給する。

【0031】燃焼用ガスは改質原料ガスと同一方向に流れ、入口側では改質原料ガス温度が高いため、大きく温度低下することなく下流側に達する。従って、燃焼層1に導入する燃料ガスおよび酸素(空気)の流量を適宜調整することにより、下流側の改質層2に必要な熱を供給して改質反応を促進し、改質効率の悪化や水素生成量の減少を防止することができる。また、温度が高い改質層の上流側では、高温による改質触媒の劣化の懸念があるが、これも、燃焼用ガスの流量を調整することによって制御することが可能である。

【0032】そして、この燃焼反応による熱で、偏平チューブ3が高温となり熱膨張するが、本発明では、偏平チューブ3とともに、容器体Hと一体のベローズ5が伸長するため、熱応力の発生を抑制することができる。よって、熱伸縮の繰返しにより構成部材が疲労する等の不具合がなく、耐久性を大きく向上させることができる。また、ベローズ5をガス流れの出口側に設けたので、温度の高い入口側に設けた場合に比べて、熱損失を小さくできる利点がある。

【0033】上記第1の実施の形態では、偏平チューブ3内に燃焼層1を、外部に改質層2を形成したが、偏平

チューブ3内に改質層2を、外部に燃焼層1を形成することもできる。また、筒状部材として偏平チューブ3を用いたが、その形状は特に制限されず、偏平形状でなくともよいし、図のような楕円断面の他、矩形断面であってもよい。また、応力緩和手段としてのベローズ5を隔板H4と一体に設けたが、容器体H側に設けて隔板H4と接合してももちろんよい。さらに、応力緩和手段は、ベローズ5に限らず、偏平チューブ3の伸縮が容器体Hに影響しないような構成であればいずれも同様の効果が得られる。

【0034】また、上記第1の実施の形態では、燃焼用ガス導入口11に、燃焼用ガスとして、燃料ガス(水素)と酸素含有ガス(空気)の混合ガスを導入する構成としたが、予混合したガスを導入した場合には、燃焼触媒が担持された反応部の入口部分で燃焼反応が進み、多くの水素が消費される。そのため下流側では水素量が少なくなってしまう。そこで、これ为了避免のために、燃料ガスと酸素含有ガスを予混合せず、燃焼層1内に分離導入することもできる。

【0035】例えば、図5(a)、(b)に示す第2の実施の形態では、燃焼用ガス導入口11の端部開口を、酸素含有ガスである空気のみを導入する空気導入口13とする一方、燃料ガスである水素を別系統の水素導入配管14を用いて、燃焼層1の反応部に直接導入する。一端側水素導入口15とする水素導入配管14は、燃焼用ガス導入口11の側壁を貫通して内部に延び、他端側に形成した水素吐出口16から水素を吐出する。本実施の形態の改質器は、上記第1の実施の形態と同様の積層型であるため、多段化された複数の燃焼層1のそれぞれに対応する複数の水素導入配管14を設置する。また、図5(a)のように、水素導入配管14の他端側を屈曲させて燃焼層1の幅方向に配置し、管壁の複数箇所に水素吐出口16を形成すると、燃焼層1内に均等に水素を供給することができる。

【0036】図5(b)のように、各燃焼層1に対し複数の水素導入配管14を設置することもできる。この場合には、複数の水素導入配管14の水素吐出口16が、ガス流れ方向の異なる部位に開口するように配置する。図5(b)では、各燃焼層1に設置した2つの水素導入配管14の水素吐出口16を、反応部の上流部と中間部にそれぞれ開口させている。これは、水素吐出口16の近傍では発熱量が多く、隣接する改質層2の温度が上がって改質反応が進行するが、下流にいくほど温度が下がって、改質反応に必要な熱が各部位に供給されないおそれがあるため、温度が改質反応開始温度になる直前に、次の水素吐出口16を設けて、改質層2全体の温度が常に改質反応開始温度以上になるようにする。

【0037】なお、水素吐出口16の設置箇所は、1または2箇所に限らず、燃焼層1(改質層2)の長さに応じて適宜増加し、改質層2の各部位に必要な熱量が供給

できるようにするとよい。この時、各水素吐出口16に対応させて水素導入配管14を設けても、共通の水素導入口15を有する単一の水素導入配管14を途中で分岐させて、複数の水素吐出口16を開口させてもよい。

【0038】このように、燃焼層1内の上流部から下流部にかけて複数箇所に水素吐出口16から水素を吐出する一方、空気導入口13から燃焼ガス導入口11内を経て空気を導入することで、燃焼層1全体で効率よく熱を発生させることができる。すなわち、上流部の水素吐出口16近傍を水素の触媒燃焼により発熱させると、その熱が改質層2へ供給されて温度が下がるが、下流部には次の水素吐出口16があるため、再び温度が上昇し、改質層2の温度を改質反応開始温度以上に保つことができる。そして、各水素吐出口16からの水素導入量と空気導入口13からの空気導入量を調整することにより、局所的に温度上昇して触媒劣化温度以上となるのを抑え、また、燃焼層1(改質層2)内のガス流れ方向の温度分布を小さくして、改質反応の効率化を図ることができる。

【0039】上記第2の実施の形態では、複数の燃焼層1の全てに対して複数の水素導入配管14を配置し、反応部の同部位(上流部および中間部)に水素吐出口16を開口させたが、各燃焼層1に配置する水素導入配管14を1つとし、改質層2を挟んで隣り合う2つの燃焼層1の水素吐出口16を、ガス流れ方向の異なる部位で開口させるようにしてもよい。これは、燃焼層1と改質層2を交互に積層した積層型の改質器では、1つの燃焼層1で発生した熱量が、その上段と下段の改質層2に供給されるからで、各水素吐出口16からの水素の吐出量を調整することで、水素導入配管14の数を減らしても、必要な熱量を確保することができる。

【0040】具体的には、図6に第3の実施の形態として示すように、各燃焼層1に対応してそれぞれ水素導入配管14を1つ設け、その水素吐出口16が、一段おきに反応部の上流部または中間部で開口するように配置すればよい。燃焼層1内には、上記第2の実施の形態と同様、空気導入口13から導入される空気が流れているため、上流部の水素吐出口16の近傍に水素が吐出されると、触媒燃焼が生じて発熱し、上下の改質層2温度を上げる。改質層2温度が下がる下流部では、中間部に水素吐出口16を有するもう一方の燃焼層1から熱が供給されて、再び温度が上昇する。このようにすれば、水素導入配管14の数を減らすことができ、簡単な構成で、効果的に改質層2全体に熱を供給することができるので、改質反応の効率が向上する。

【0041】図7(a)に本発明の第4の実施の形態を示す。上記第2および第3の実施の形態のように、水素と空気を分離供給する構成では、水素吐出口16をガス流れ方向の複数箇所に設けることによって、改質層2全体の温度分布を均一にし、改質率の向上を図っている。

この時、水素吐出口16の開口位置に応じて吐出される水素量を変更し、改質層2の温度を調整しているが、立ち上げ時や過渡変化時等の非定常状態では、安定した性能が得にくい。このため、図7(a)に示すように、水素導入口15へ水素を断続的に供給して、水素吐出口16からの水素の吐出を間欠的に行い、その吐出量をデューティ制御する制御手段6を設けることができる。

【0042】図7(a)の基本構成は上記第2の実施の形態と同じで、各燃焼層1に複数の配管14を導入して、反応部の上流部と中間部に水素吐出口16を開口させている。制御手段6は、上流部の水素吐出口16および中間部の水素吐出口16へ至る水素導入配管14を開閉することにより、各水素吐出口16への水素の供給を、それぞれ独立して制御することができ、この制御方法として、図7(b)、(c)に示すデューティ制御を行う。デューティ制御は、一定時間において、水素導入配管14から水素が導入されるON時間の割合(デューティ比)を変更することにより、水素導入量を調整するもので、制御性に優れるので、非定常時にも十分対向することができる。よって、触媒劣化温度以上の局所的な温度上昇を抑え、かつ運転状態に応じた適切な量の水素を導入することができるので、燃焼層1(改質層2)内の温度分布を小さくする効果が高く、改質反応の効率を向上させる。

【0043】図8に本発明の第5の実施の形態を示す。本実施の形態では、燃焼層1内における燃焼触媒の担持範囲を適切に設定し、燃焼層1内が必要以上に高温とならないようにする。上記図1に示した第1の実施の形態の基本構成において、燃焼層1上流部、例えば、改質層2の整流板43部分は、改質原料ガスの供給温度で昇温された状態にある。燃焼層1内全体に燃焼触媒が担持されている場合、この状態で、燃焼用ガス導入口11に燃焼用ガス(水素と空気;水素濃度4%以上)を導入すると、触媒燃焼の反応熱によりさらに燃焼ガス温度が上昇する。

【0044】例えば、メタノール改質の場合、約300℃のメタノール水蒸気が流れるため、この部分に相当する燃焼層1も約300℃となる。燃焼触媒が担持されていれば、さらに高温となり、燃焼用ガス導入口11内においてわずかな着火エネルギーで気相反応を起こして、火炎燃焼する。そのため、プレートフィン41上での触媒燃焼による熱交換ではなく、高温のガス流体による熱交換になり、熱交換率が低下するので、改質層2全体の温度が所望の温度に上昇しない。また、燃焼層1内で局所的な温度上昇を引き起こし、容器体H(溶接部等)への影響が懸念される。

【0045】これを防止するために、本実施の形態では、改質層2と熱交換を行うことによって温度上昇が抑えられる部分以外には、燃焼触媒を担持しないものとする。また、熱交換を行う部分においても、導入される改

質原料ガスが高温で導入される場合には、熱交換部（プレートフィン設置部）入口での温度が水素の自然発火温度近くまで上昇し、同様に、わずかな着火エネルギーで気相反応を起こす。そのため、改質原料ガスが改質反応を起こして温度が低下し、改質開始温度（通常、250℃）程度に下がる部位までは、対応する燃焼層1に触媒担持を行わないようにする。具体的には、図8のように、改質層2の整流板43が位置する最上流部から、プレートフィン42設置部において改質層2の温度が改質開始温度（通常、250℃）程度に低下する部位まで（図8にaで示す範囲）、対応する燃焼層1の燃焼触媒を除去または担持しないようにする。

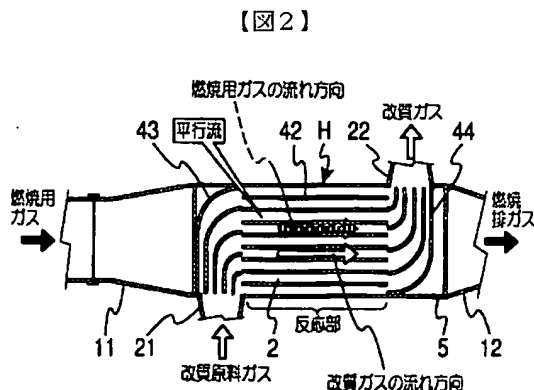
【0046】これにより、燃焼ガス温度が必要以上に上昇しないようにして、燃焼ガスの気相反応を防止することができる。そして、燃焼層1の触媒燃焼で発生した熱を効率よく改質層2に伝達して、改質層2全体で改質反応が有効に促進できるような温度を維持することができる。

【0047】また、図9に本発明の第6の実施の形態として示すように、燃焼用ガス導入口11内に、これを横切って発泡金属等よりなる火炎伝播防止手段たる火炎伝播防止層7を形成すれば、仮に燃焼層1で気相反応が発生しても、上流の燃焼用ガス供給用の配管71内への逆火を防止し、安全性を確保することができる。伝播防止層7としては、発泡金属以外に、二重金属メッシュ、焼結金属等を用いることもでき、図9のように、火炎伝播防止層7を複数層設置すると、より効果的である。この場合、火炎伝播防止層7の数や層間の間隔は、必要に応じて適宜設定すればよい。火炎また、火炎伝播防止層7は、圧力損失が低く、整流作用が大きいので、これを取り付けることで、燃焼用ガスを多段化された燃焼層に均一に供給できる効果も期待できる。

【図面の簡単な説明】

【図1】本発明の第1の実施の形態を示し、(a)は改質器の全体構成を示す分解斜視図、(b)は全体概略図である。

【図2】図1(b)のA-A線断面図である。



【図3】(a)は本発明の第1の実施の形態における改質器の要部斜視図、(b)は要部概略図である。

【図4】(a)は積層型改質器の原理を説明するための図、(b)は部分酸化型改質器の原理を説明するための図である。

【図5】本発明の第2の実施の形態を示し、(a)は改質器の全体構成を示す分解斜視図、(b)は全体概略図である。

【図6】本発明の第3の実施の形態を示す改質器の全体概略図である。

【図7】本発明の第4の実施の形態を示し、(a)は改質器の全体概略図、(b)は燃焼層上流部への水素導入量の制御の一例を示す図、(c)は燃焼層下流部への水素導入量の制御の一例を示す図である。

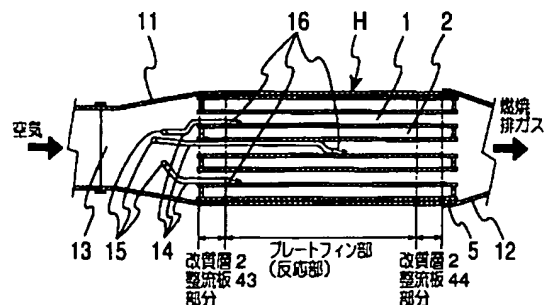
【図8】本発明の第5の実施の形態を示す改質器の全体概略図である。

【図9】本発明の第6の実施の形態を示す改質器の全体概略図である。

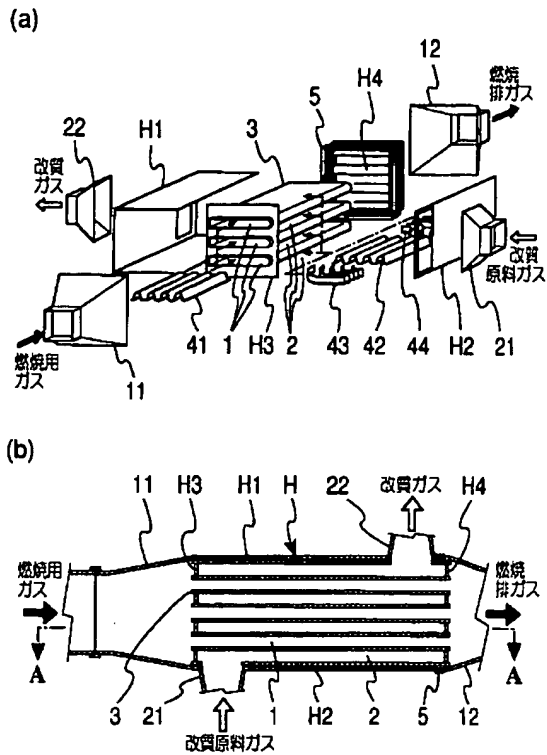
【符号の説明】

- H 容器体
- H3、H4 隔板（端面）
- 1 燃焼層
- 11 燃焼用ガス導入口
- 12 燃焼排ガス導出口
- 13 空気導入口（酸素含有ガス導入口）
- 14 水素導入配管
- 15 水素導入口（燃料ガス導入口）
- 16 水素吐出口（燃料ガス吐出口）
- 2 改質層
- 21 改質原料ガス導入口
- 22 改質ガス導出口
- 3 偏平チューブ（筒状部材）
- 41、42 プレートフィン
- 43、44 整流板
- 5 ペローズ（応力緩和手段）
- 6 制御手段
- 7 火炎伝播防止層（火炎伝播防止手段）

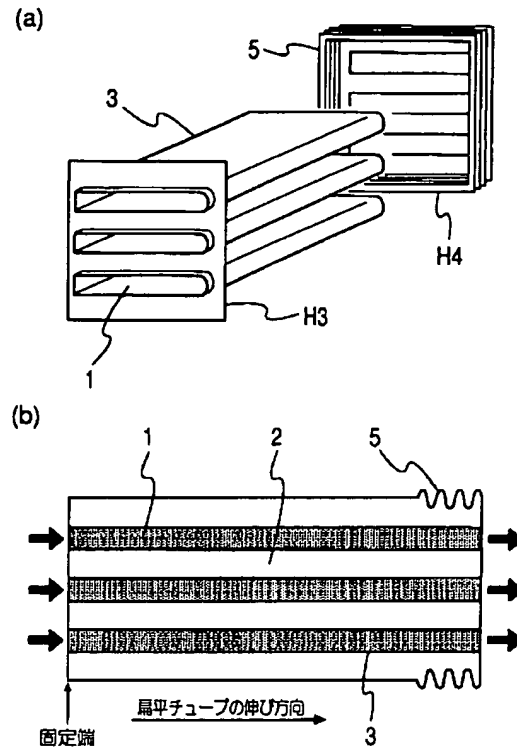
【図6】



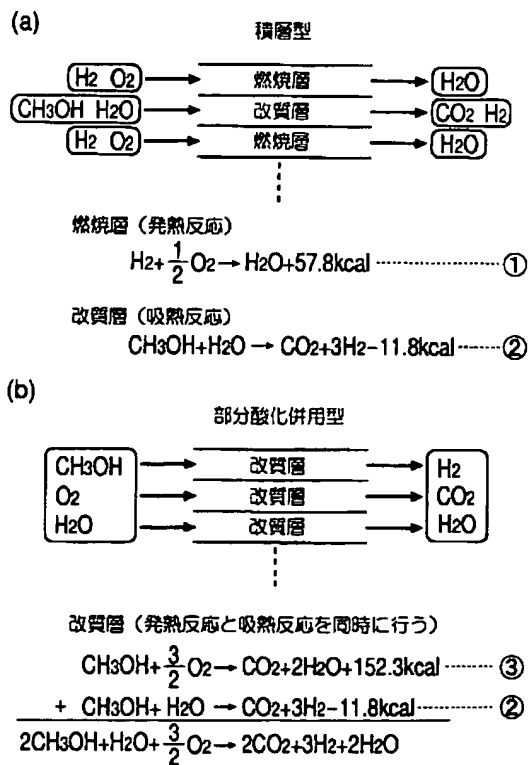
【図1】



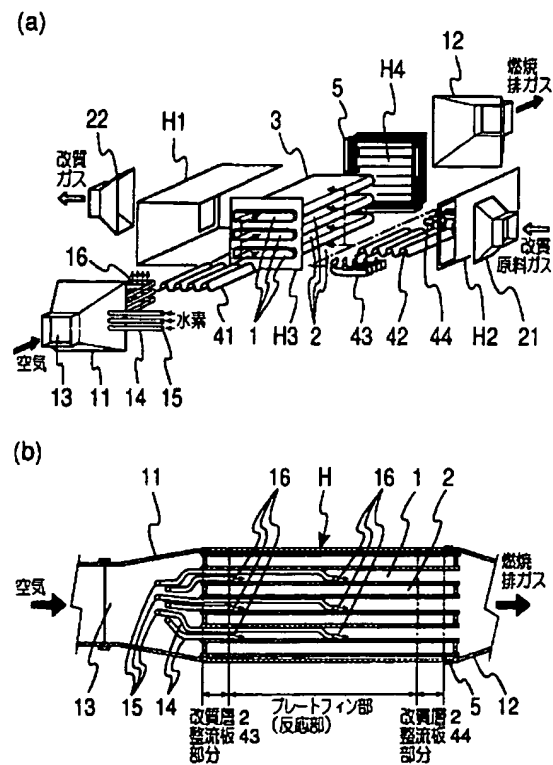
【図3】



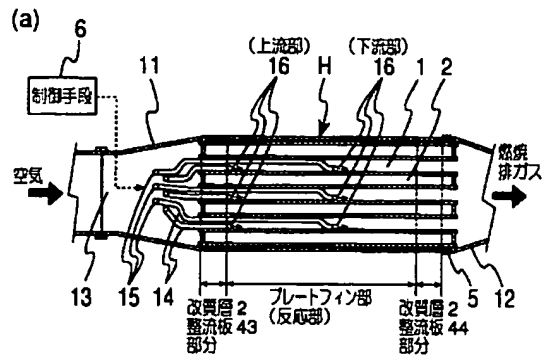
【図4】



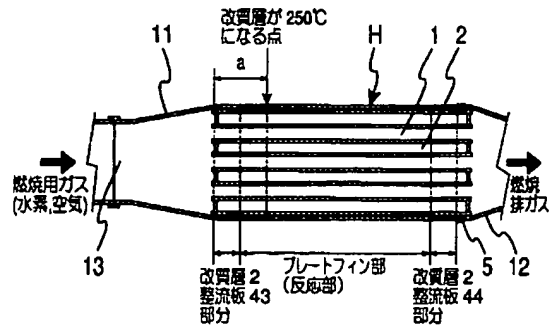
【図5】



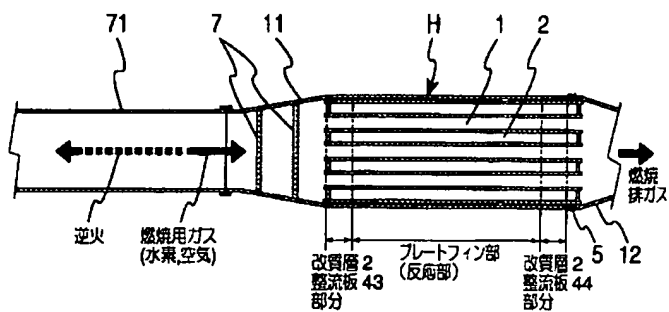
【図7】



【図8】



【図9】



フロントページの続き

(72)発明者 加藤 育康
愛知県西尾市下羽角町岩谷14番地 株式会社
日本自動車部品総合研究所内

(72)発明者 永見 哲夫
愛知県豊田市トヨタ町1番地 トヨタ自動車株式会社内

Fターム(参考) 3L065 BA02

4G040 EA02 EA06 EB12 EB42 EB46

4G140 EA02 EA06 EB12 EB42 EB46

5H027 BA01